

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2002-167484

(43)Date of publication of application : 11.06.2002

(51)Int.Cl.

C08L 23/10  
C08J 3/20  
C08J 5/00  
C08K 3/34  
//(C08L 23/10  
C08L 23:26 )

(21)Application number : 2000-367960

(71)Applicant : JAPAN POLYCHEM CORP  
TOYOTA CENTRAL RES & DEV LAB  
INC

(22)Date of filing : 04.12.2000

(72)Inventor : NAKAYAMA KOICHI  
YANO KAZUNORI  
FUJITA YUJI  
KOBAYASHI AKIRA  
KATO MAKOTO  
USUKI ARIMITSU  
HASEGAWA NAOKI  
OKAMOTO HIROTAKA  
TSUKIGASE AZUSA

## (54) POLYPROPYLENE BASED RESIN COMPOSITION AND PRODUCTION METHOD THEREFOR

## (57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain a polypropylene-based resin composition composed of a polypropylene resin, a compatibilizing agent and an inorganic filler, and excellent in the balance of material strength and a specific gravity of the material, and to provide a production method of this composition.

SOLUTION: The polypropylene-based resin composition is composed of (1) 50-98 wt.% of a specific polypropylene resin, (2) 1-49 wt.% of a specific polypropylene resin denatured by an acid anhydride, and (3) 1-30 wt.% of a specific inorganic lamellar clay mineral, and the production method therefor is also provided.

## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision]

of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's  
decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2002-167484

(P2002-167484A)

(43) 公開日 平成14年6月11日 (2002.6.11)

(51) IntCl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テーマコード* (参考)
C 0 8 L 23/10		C 0 8 L 23/10	4 F 0 7 0
C 0 8 J 3/20	C E S	C 0 8 J 3/20	C E S B 4 F 0 7 1
5/00		5/00	4 J 0 0 2
C 0 8 K 3/34		C 0 8 K 3/34	
// (C 0 8 L 23/10		(C 0 8 L 23/10	
審査請求 未請求 請求項の数 6 O L (全 8 頁) 最終頁に続く			

(21) 出願番号 特願2000-367960 (P2000-367960)

(22) 出願日 平成12年12月4日 (2000.12.4)

(71) 出願人 596133485

日本ポリケム株式会社

東京都千代田区有楽町一丁目10番1号

(71) 出願人 000003609

株式会社豊田中央研究所

愛知県愛知郡長久手町大字長湫字横道41番地  
地の1

(72) 発明者 中山 耕一

三重県四日市市東邦町1番地 三菱化学株式会社  
基盤技術研究所内

(74) 代理人 100106596

弁理士 河備 健二

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 ポリプロピレン系樹脂組成物およびその製造方法

(57) 【要約】

【課題】 ポリプロピレン樹脂と相溶化剤と無機充填材とからなる、材料強度と材料比重のバランスに優れたポリプロピレン系樹脂組成物およびその製造方法を提供すること。

【解決手段】 (1) 特定のポリプロピレン樹脂; 50~98重量%、(2) 特定の酸無水物で変性したポリプロピレン系樹脂; 1~49重量%および(3) 特定の無機層状粘土鉱物; 1~30重量%からなるポリプロピレン系樹脂組成物並びにその製造方法。

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 ポリプロピレン単独重合体および／またはプロピレンと他の $\alpha$ -オレフィンとの共重合体（成分1）を50～98重量%、酸無水物にて変性したポリプロピレン系樹脂（成分2）を1～49重量%並びに無機層状粘土鉱物（成分3）を1～30重量%含有する樹脂組成物であって、各成分が下記の要件を満たしてなるポリプロピレン系樹脂組成物。

（成分1）メルトフローレート（230℃、2.16 kg荷重）が10～200 g/10分であり、共重合体中のプロピレン以外の $\alpha$ -オレフィン含有量が0.1～80重量%

（成分2）メルトフローレート（230℃、2.16 kg荷重）が50～2000 g/10分であり、ポリプロピレン系樹脂と結合している酸無水物濃度が0.8～4.4重量%、かつ分子量10000以下の該ポリプロピレン系樹脂と結合している酸無水物濃度が0.8重量%以上、さらに該変性ポリプロピレン系樹脂に含まれる、ポリプロピレン系樹脂と結合していない遊離の酸無水物濃度が0.5重量%以下

（成分3）珪素化合物を含有する無機層状粘土鉱物であって、該無機層状粘土鉱物の表面に存在する陽イオンがアンモニウム塩によってイオン交換されており、その含有量が10～50重量%

【請求項2】 上記ポリプロピレン系樹脂組成物の比重が1未満である、請求項1に記載のポリプロピレン系樹脂組成物。

【請求項3】 成分1および成分2を熔融混練した後、該熔融混練物（A）に成分3を接触させて混練することにより分散させる、請求項1または2に記載のポリプロピレン系樹脂組成物の製造方法。

【請求項4】 二軸押出機を用いて上記熔融混練物（A）に成分3を分散させる、請求項3に記載のポリプロピレン系樹脂組成物の製造方法。

【請求項5】 成分3を接触後の混練時に気体成分の脱揮吸引を行う、請求項3または4に記載のポリプロピレン系樹脂組成物の製造方法。

【請求項6】 請求項3ないし5に記載の製造方法により製造された、請求項1または2に記載のポリプロピレン系樹脂組成物からなる成形体。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、ポリプロピレン樹脂、酸無水物で変性したポリプロピレン系樹脂および無機層状粘土鉱物から構成される樹脂組成物並びにその製造方法に関し、さらに詳しくは、無機層状粘土鉱物がナノメートルオーダーでポリプロピレン樹脂中に分散していることにより、材料強度と材料比重のバランスが改善されたポリプロピレン系樹脂組成物並びにその製造方法に関する。

## 【0002】

【従来の技術】汎用樹脂であるポリプロピレンは、近年の技術開発の進歩に伴い、着実に性能向上が図られ、自動車用部品に代表される工業部材として幅広く使用されている。しかしながら、エンジニアリングプラスチックを完全に凌駕するまでの性能は得られておらず、特に高剛性や高耐熱性を要求されるバンパー、ファンシェラウド、内装トリムのような用途等では、その性能不足を補うために、タルクや炭酸カルシウムといった無機充填材を充填して要求物性を満足する材料設計が行われている。このような無機充填材は、ポリプロピレンに比べて比重が高いため、充填材の使用により材料強度は向上するものの、材料比重が増加し、軽量化という観点からは、好ましくない。このため、特開平10-182892号公報や同10-30039号公報には、オレフィン系樹脂に層状粘土鉱物を微細分散させて、補強効果を高め、低充填量にて材料強度を向上させることにより、強度と比重のバランスを改善する試みが開示されている。

【0003】しかしながら、上記において相溶化剤として使用される酸無水物変性ポリオレフィンには、一般に、未反応の酸無水物が多く含有されていたり、ポリオレフィン1分子中に結合している酸無水物の結合数が少ないため、層状粘土鉱物とポリオレフィン樹脂との相溶化能力が乏しく、層状粘土鉱物の微細分散化が不充分であった。

## 【0004】

【発明が解決しようとする課題】本発明は、上記の従来技術の欠点を解消し、より効率的に無機層状粘土鉱物をポリプロピレン樹脂中に微細分散させるための相溶化剤を含んだ、ポリプロピレン樹脂と無機層状粘土鉱物とからなる、材料強度と材料比重のバランスに優れたポリプロピレン系樹脂組成物およびその製造方法を提供することを課題とする。

## 【0005】

【課題を解決するための手段】本発明者らは、上記課題を解決するために、種々の研究を重ねた結果、特定のポリプロピレン樹脂に、特定の酸無水物で変性したポリプロピレン系樹脂および特定の無機層状粘土鉱物を特定の比率で配合することにより得られるポリプロピレン系樹脂組成物は、該無機層状粘土鉱物が該ポリプロピレン樹脂中にナノメートルオーダーで微細分散した分子構造を有し、材料強度と材料比重のバランスの優れたポリプロピレン系樹脂組成物を与えることを見出し、本発明を完成するに至ったものである。

【0006】すなわち、本発明の第1の発明によれば、ポリプロピレン単独重合体および／またはプロピレンと他の $\alpha$ -オレフィンとの共重合体（成分1）を50～98重量%、酸無水物にて変性したポリプロピレン系樹脂（成分2）を1～49重量%並びに無機層状粘土鉱物（成分3）を1～30重量%含有する樹脂組成物であっ

て、各成分が下記の要件を満たしてなるポリプロピレン系樹脂組成物が提供される。

【成分1】メルトフローレート（230℃、2.16 kg荷重）が10～200 g/10分であり、共重合体中のプロピレン以外の $\alpha$ -オレフィン含有量が0.1～80重量%

【成分2】メルトフローレート（230℃、2.16 kg荷重）が50～2000 g/10分であり、ポリプロピレン系樹脂と結合している酸無水物濃度が0.8～4.4重量%、かつ分子量10000以下の該ポリプロピレン系樹脂と結合している酸無水物濃度が0.8重量%以上、さらに該変性ポリプロピレン系樹脂に含まれる、ポリプロピレン系樹脂と結合していない遊離の酸無水物濃度が0.5重量%以下

【成分3】珪素化合物を含有する無機層状粘土鉱物であって、該無機層状粘土鉱物の表面に存在する陽イオンがアンモニウム塩によってイオン交換されており、その含有量が10～50重量%

【0007】また、本発明の第2の発明によれば、上記ポリプロピレン系樹脂組成物の比重が1未満であるポリプロピレン系樹脂組成物が提供される。

【0008】さらに、本発明の第3の発明によれば、上記成分1および成分2を溶融混練した後、該溶融混練物（A）に上記成分3を接触させて混練することにより分散させるポリプロピレン系樹脂組成物の製造方法が提供される。

【0009】また、本発明の第4の発明によれば、二軸押出機を用いて上記溶融混練物（A）に上記成分3を分散させるポリプロピレン系樹脂組成物の製造方法が提供される。

【0010】また、本発明の第5の発明によれば、上記成分3を接触後の混練時に気体成分の脱揮吸引を行うポリプロピレン系樹脂組成物の製造方法が提供される。

【0011】さらに、本発明の第6の発明によれば、上記の製造方法により製造されたポリプロピレン系樹脂組成物からなる成形体が提供される。

【0012】

【発明の実施の形態】以下に、本発明について詳細に説明する。

【1】ポリプロピレン系樹脂組成物

（1）ポリプロピレン樹脂（成分1）

本発明で使用するポリプロピレン樹脂は、ポリプロピレン単独重合体、または、プロピレンと他の $\alpha$ -オレフィンを一成分以上共重合した共重合体、もしくは、該単独重合体と該共重合体との混合物のいずれであってもよい。但し、混合物を用いる場合には、共重合体成分を全体の5～50重量%とすることが好ましい。共重合体成分が、5重量%未満であると、共重合体成分を混合する効果が不十分であり、50重量%を超えるとポリプロピレン単独重合体の特性が損なわれるため、いずれも好ま

しくない。

【0013】上記プロピレンと他の $\alpha$ -オレフィンとの共重合体に用いられる $\alpha$ -オレフィンとしては、例えば、エチレン、1-ブテン、1-ペンテン、1-ヘキセン、4-メチル-1-ペンテン、1-オクテン等が挙げられる。また、該共重合体は、プロピレンと他の $\alpha$ -オレフィンとのブロック、ランダムないしはグラフト共重合体のいずれでも、もしくはこれらの混合物であってもよい。さらに、該共重合体は、プロピレンと上記 $\alpha$ -オレフィンからなるエラストマーであってもよい。該共重合体中のプロピレン以外の $\alpha$ -オレフィン含有量は、0.1～80重量%のものが使用される。 $\alpha$ -オレフィン含有量が0.1重量%未満であると共重合体としての特性を示さず、一方、80重量%を超えるとポリプロピレンとの相溶性が低下するため好ましくない。

【0014】本発明のポリプロピレン樹脂のメルトフローレート（以下、MFRと略す。）は、10～200 g/10分であるが、好ましくは20～150 g/10分、さらに好ましくは25～100 g/10分のものである。MFRが10 g/10分未満のものは、無機層状粘土鉱物を混合した最終組成物の流動特性が悪化し、200 g/10分を超えるものは、成形品の衝撃強度が不足し、それぞれ不適である。上記MFRは、JIS-K7210（230℃、2.16 kg荷重）に準拠して測定されたものである。

【0015】上記ポリプロピレン単独重合体またはプロピレンと他の $\alpha$ -オレフィンとの共重合体は、例えば、高立体規則性触媒を用いて、スラリー重合、気相重合あるいは塊状重合により製造される。重合方式としては、バッチ重合、連続重合のいずれの方式も採用することができるが、生産性の観点より連続重合が好ましい。高立体規則性触媒としては、例えば、塩化マグネシウムに四塩化チタン、有機酸ハライドおよび有機珪素化合物を接触させて形成した固体成分に、有機アルミニウム化合物成分を組合わせた触媒を用いることができる。

【0016】また、上記プロピレンと他の $\alpha$ -オレフィンからなるエラストマーの製造方法も、特に限定されないが、バナジウム化合物系や国際公開WO91/04257号公報等示されるようなメタロセン系触媒を用いて製造されたものが好ましい。

【0017】（2）酸無水物で変性したポリプロピレン系樹脂（成分2）

本発明で使用する酸無水物にて変性したポリプロピレン系樹脂のポリプロピレン樹脂部分は、上記、成分1と同一のものが使用できる。

【0018】本発明の酸無水物で変性したポリプロピレン系樹脂のMFRは、50～2000 g/10分であるが、好ましくは80～1500 g/10分、さらに好ましくは100～1000 g/10分のものである。MFRが50 g/10分未満のものは、層状粘土鉱物層間へ

のポリマー挿入がされにくく、一方、2000g/10分を超えるものは、ポリプロピレンとの相溶性が悪いため、それぞれ不適である。上記MFRは、JIS-K7210(230℃、2.16kg荷重)に準拠して測定されたものである。

【0019】また、本発明の酸無水物にて変性したポリプロピレン系樹脂は、ポリプロピレン系樹脂と結合している酸無水物濃度が0.8~4.4重量%、好ましくは1.2~3重量%、さらに好ましくは1.5~2.5重量%のものが使用される。さらに、分子量10000以下のポリプロピレン系樹脂組成物と結合している酸無水物濃度が0.8重量%以上、好ましくは0.9~2.5重量%、さらに好ましくは1~2重量%である。また、酸無水物変性したポリプロピレン系樹脂中の、実質的にポリプロピレン系樹脂と結合していない遊離の酸無水物濃度は、0.5重量%以下、好ましくは0.1重量%以下である。

【0020】上記において、分子量10000以下のポリプロピレン系樹脂と結合している酸無水物濃度が0.8重量%未満であると、層状粘土鉱物の層間への変性ポリプロピレン系樹脂の挿入が効率的に行われない。また、遊離の酸無水物濃度が、0.5重量%を超えると粘土鉱物表面に遊離酸無水物が吸着することにより、酸無水物変性ポリプロピレンの層間挿入の阻害因子となる。さらに、酸無水物濃度が0.8重量%未満であると相溶化剤としての機能が不十分であり、一方、4.4重量%を超えるとポリプロピレン系樹脂(成分1)との親和性が低下するため、いずれも不適である。

【0021】酸無水物変性したポリプロピレン系樹脂に含まれる、酸無水物濃度は、次の手順で測定した。酸無水物変性したポリプロピレン系樹脂を、熱キシレンを用いて全溶解させた。その後、室温まで冷却し酸変性ポリプロピレンを再沈させ濾過分別した。これにより、遊離の酸無水物は、キシレン中に溶解したまま、分別した酸変性ポリプロピレン中には、ポリプロピレン系樹脂と結合した酸無水物だけが含まれる。上記の方法で遊離の酸無水物を取り除いた後、ゲルパーミエーション・クロマトグラフィー(GPC)に接続した赤外吸収スペクトロメーターを用いて、変性ポリプロピレン系樹脂の分子量区分毎に分別分取した試料の赤外吸収ピークを定量し、その強度比および予め作成した検量線から酸変性濃度を定量することができる。分子量10000以下のポリプロピレン系樹脂と結合している酸無水物濃度は、分子量10000以下の分子量区分で分別分取した試料の酸無水物濃度を、分取量に基づいて算出した酸変性濃度であり、ポリプロピレン系樹脂と結合している全体の酸無水物濃度は、全分子量区分の酸無水物濃度を、分取量に基づいて算出した酸変性濃度である。また、熱キシレンに溶解させる前の変性ポリプロピレン系樹脂に含まれる、酸無水物濃度を赤外吸収スペクトロメーターを用いて、

赤外吸収ピークを定量し、その強度比から酸無水物濃度を判定し、上記のポリプロピレン系樹脂と結合している全体の酸無水物濃度との差から遊離の酸無水物の濃度を算出することができる。

【0022】本発明の酸無水物は、無水マレイン酸、無水フタル酸、無水琥珀酸等の任意の酸無水物が好適に使用できるが、最も好ましい酸無水物は、無水マレイン酸である。このような酸無水物変性ポリプロピレン系樹脂は、有機溶媒中にてポリプロピレン重合体粉末と酸無水物を有機過酸化物の存在下で接触させて反応させる方法、有機溶媒を用いることなく、ポリプロピレン重合体粉末と酸無水物を有機過酸化物やイオン化ビームといったラジカル発生剤を用いて反応させる方法、または、溶融混練機を用い、有機過酸化物を開始剤として反応させる方法等が知られている。本発明で用いる酸無水物にて変性したポリプロピレン系樹脂は、MFR(230℃、2.16kg荷重)が50~2000g/10分であって、ポリプロピレン系樹脂と結合している酸無水物濃度が、0.8~4.4重量%、分子量10000以下のポリプロピレン系樹脂と結合している酸無水物濃度が0.8重量%以上であって、実質的にポリプロピレン系樹脂と結合していない遊離の酸無水物濃度は、0.5重量%以下であれば、任意の方法で製造した酸無水物変性ポリプロピレン系樹脂を用いることができる。

【0023】(3)無機層状粘土鉱物(成分3)

本発明で使用する無機層状粘土鉱物は、珪素原子と酸素原子から構成される四面体シート層と、アルミニウムやマグネシウム等の金属原子と水酸基または酸素原子から構成される八面体シート層が積層した、無機層状化合物である。このような無機層状粘土鉱物としては、スクメタイト、パーミキュライト、ハロサイト等の天然の鉱物や、水熱合成法等によって人工的に合成される合成マイカ等が挙げられるが、スクメタイト類、特にモンモリロナイトが好適に使用される。

【0024】該無機層状粘土鉱物は、ポリプロピレン樹脂との親和性を向上させるために、層表面に存在するナトリウムイオンまたはカルシウムイオン等の陽イオンを、炭素および水素原子のみから構成される長鎖分子を有するアンモニウム塩によってカチオン交換して使用される。該アンモニウム塩としては、炭素数が16以上の長鎖分子を一つ以上有している化合物が好ましく、代表的な化合物として、例えば、炭素数が18であるステアリルアンモニウム塩等を挙げることができる。

【0025】該アンモニウム塩の含有量は、10~50重量%、好ましくは20~40重量%、さらに好ましくは25~35重量%である。該アンモニウム塩の含有量が、10重量%未満であったり、または50重量%を超えたりすると、無機層状粘土鉱物とポリプロピレン樹脂との親和性が得られず、無機層状粘土鉱物がポリプロピレン樹脂中に十分分散しなかったり、無機層状粘土鉱物

のポリプロピレン樹脂中における比率が低下し、十分な補強効果が得られないため、いずれも好ましくない。

#### 【0026】(4) その他の付加成分

本発明のポリプロピレン系樹脂組成物においては、本発明の効果を著しく損なわない範囲で、あるいは、さらに性能の向上を図る為に、上記、成分1～成分3以外に、以下に示す任意の添加剤や配合材成分を配合することができる。具体的には、酸化防止剤、紫外線吸収剤、光安定化剤、熱安定化剤、滑剤、帯電防止剤、着色剤、導電剤、分散剤、印刷性付与剤、充填材、難燃剤、難燃助剤、発泡剤、加工助剤、中和剤、重金属不活性化剤、造核剤、防曇剤等を挙げることができる。

【0027】光安定化剤や紫外線吸収剤、例えば、ヒンダードアミン化合物系、ベンゾエート化合物系、ベンゾトリアゾール系、ベンゾフェノン系やホルムアミジン系等は、耐候性の付与・向上に有効である。また、造核剤、例えば、タルク等の無機系、または芳香族カルボン酸の金属塩、ソルビトール系もしくは芳香族リン酸金属塩等の有機系の造核剤は、剛性や耐傷つき性の付与・向上に有効である。

#### 【0028】(5) 配合割合

本発明のポリプロピレン系樹脂組成物に配合される、成分1、成分2および成分3の割合は、成分1が50～98重量%、好ましくは55～90重量%、さらに好ましくは60～80重量%である。成分1の配合割合が50重量%未満では、ポリプロピレンとしての特性の発現が不十分であり、98重量%を超えると無機物による補強効果が十分に得られない。

【0029】成分2の配合割合は、1～49重量%、好ましくは10～40重量%、さらに好ましくは20～30重量%である。成分2の配合割合が1重量%未満では、相溶化剤としての機能を果たさず、49重量%を超えると、ポリプロピレンの特性を低下させる。

【0030】成分3の配合割合は、1～30重量%、好ましくは3～20重量%、さらに好ましくは5～10重量%である。成分3の割合が1重量%未満では、十分な補強効果が得られず、30重量%を超えると、比重が増大し好ましくない。

【0031】また、場合により配合される、その他の付加成分は、成分1～成分3の合計100重量部に対し、0.01～20重量部程度である。

【0032】〔II〕ポリプロピレン樹脂組成物の製造方法

#### (1) 混練・造粒

本発明のポリプロピレン系樹脂組成物は、上記成分1、成分2、成分3、および場合により、その他の付加成分を、上記配合割合で配合して一軸押出機、二軸押出機、バンバリーミキサー、ロールミキサー、ブラベンダーラストグラフ、ニーダー、ラボプラスミル等の通常の混練機を用いて混練・造粒する方法や、スーパーミキサ

ーやヘンシェルミキサー等の高速回転型攪拌混合機で攪拌・混練しながら混練物を得、その後押出機で造粒する、いわゆる攪拌混練造粒方法等によって製造される。

【0033】この場合、各成分の分散を良好にすることができ混練・造粒方法を選択することが好ましく、通常は、高速回転型攪拌混合機にて攪拌混練し（特開昭63-27550号公報参照）、その混練物を別の造粒機で造粒する攪拌造粒方法、または一軸もしくは二軸の押出機を用いて混練・造粒が行われる。

10 【0034】この混練・造粒の際には、上記成分1、成分2、成分3、場合により、その他の付加成分の配合物を、同時に混練してもよく、また性能向上を図るべく各成分を分割、例えば、先ず、成分1と成分2の一部または全部を混練し、その後に残り成分を混練・造粒することもできる。

20 【0035】本発明のポリプロピレン系樹脂組成物の製造方法においては、成分3に含有されるアンモニウム塩化合物の熱劣化を防止するため、先ず、成分1と成分2および必要に応じて添加した、その他の付加成分を熔融混練した後に、該熔融混練物(A)に成分3をサイドフィーダーより添加し、接触させることにより混練を継続して成分3をポリプロピレン樹脂中に分散させることが好ましい。この際、二軸押出機を用いて混練を行うと、成分3をポリプロピレン樹脂中へより微細分散させ得るので、さらに好ましい。

30 【0036】さらに、本発明のポリプロピレン系樹脂組成物の製造方法においては、成分3は、その見掛け比重が低く、上記成分1と成分2との熔融混練物(A)に成分3を添加し接触させる際に、ガス成分を巻き込んでしまうため、成分3を接触した後に気体成分を、脱揮吸引する工程を設けることが好ましい。本発明において、上記熔融混練は、通常180～200℃において、3～300秒間行われる。

40 【0037】本発明のポリプロピレン系樹脂組成物は、特定成分からなる樹脂組成物を用い、かつ上記のようにして製造するため、ポリプロピレン樹脂の補強材である無機層状粘土鉱物がナノメートルオーダーでポリプロピレン樹脂中に微細分散している。そのため、無機層状粘土鉱物による補強効果が高く、従来のタルクや炭酸カルシウムといった無機充填材を充填したポリプロピレン樹脂組成物では達成し得なかったような、材料強度と材料比重のバランスに優れたポリプロピレン系樹脂組成物を得ることができる。また、本発明のポリプロピレン系樹脂組成物の比重は、1未満であることが好ましい。

【0038】〔III〕ポリプロピレン系樹脂組成物の用途

50 本発明のポリプロピレン系樹脂組成物は、材料強度と材料比重のバランスに優れるため各種の生活資材用製品、自動車部品や家電機器部品等各種工業部品の成形材料としての実用性能を有しており、なかでも、高剛性および

高耐熱性が要求される自動車内外装部品、とりわけ、バンパー、ファンシュラウド等の外装部品用成形材料、インストルメントパネル、コンソール、ピラー、ドアトリム等の内装部品用成形材料として好適である。

#### 【0039】

【実施例】本発明のポリプロピレン系樹脂組成物およびその製造方法を、さらに詳細に説明するために、以下に実施例を示して具体的に説明するが、本発明は、その趣旨を逸脱しない限り、これによって限定されるものではない。

【0040】本実施例において、ポリプロピレン系樹脂組成物の熔融混練には、バッチ式熔融混練装置（東洋精機社製；ラボブラストミル）または、連続式二軸押出機（日本製鋼所製；TEX30）を用いた。

【0041】また、MFRの測定は、JIS-K7210に準拠し、230℃、2.16kg荷重にて行った。

【0042】さらに、材料強度は、動的粘弾性測定装置（レオメトリック社製；RSA-2）および、両持ち曲げ試験装置（島津製作所製；UTM-5T）を用いて、20℃での貯蔵弾性率および、23℃での曲げ弾性率を測定して、その評価を行った。

#### 【0043】実施例1

ポリプロピレン樹脂（成分1）として、MFRが10g/10分であるホモポリプロピレンを、酸無水物にて変性したポリプロピレン系樹脂（成分2）として、MFRが1200g/10分であって、ホモポリプロピレンと結合している酸無水物濃度が2重量%、分子量10000以下のホモポリプロピレンと結合している酸無水物濃度が1.01重量%、（成分2）中に含まれる遊離の酸無水物濃度が0重量%である無水マレイン酸変性ポリプロピレンを、無機層状粘土鉱物（成分3）として、ステアリルアンモニウム塩を30重量%含有するモンモリロナイトを、それぞれ各成分の配合割合が、成分1/成分2/成分3=83.3重量%/11.7重量%/5.0重量%となるように配合し、バッチ式混練機（ラボブラストミル）を用いて熔融混練した。得られたポリプロピレン系樹脂組成物中の無機層状粘土鉱物の最終充填量は、3.5重量%であった。得られたポリプロピレン系樹脂組成物の比重、MFRおよびプレス片の20℃における貯蔵弾性率を表1に示す。

#### 【0044】実施例2

成分1～成分3の配合割合を、成分1/成分2/成分3=76.2重量%/16.7重量%/7.1重量%としたこと以外は、実施例1と同様にしてポリプロピレン系樹脂組成物を製造した。得られたポリプロピレン系樹脂組成物中の無機層状粘土鉱物の最終充填量、並びに該組成物の比重、MFRおよびプレス片の貯蔵弾性率を表1に示す。

#### 【0045】実施例3

成分1～成分3の配合割合を、成分1/成分2/成分3

=64.2重量%/25.1重量%/10.7重量%としたこと以外は、実施例1と同様にしてポリプロピレン系樹脂組成物を製造した。得られたポリプロピレン系樹脂組成物中の無機層状粘土鉱物の最終充填量、並びに該組成物の比重、MFRおよびプレス片の貯蔵弾性率を表1に示す。

#### 【0046】実施例4

成分1～成分3の配合割合を、成分1/成分2/成分3=52.4重量%/33.3重量%/14.3重量%としたこと以外は、実施例1と同様にしてポリプロピレン系樹脂組成物を製造した。得られたポリプロピレン系樹脂組成物中の無機層状粘土鉱物の最終充填量、並びに該組成物の比重、MFRおよびプレス片の貯蔵弾性率を表1に示す。

#### 【0047】実施例5

成分1～成分3の配合割合を、成分1/成分2/成分3=66.5重量%/28.5重量%/5.0重量%とし、二軸押出機を用いて熔融混練したこと以外は、実施例1と同様にしてポリプロピレン系樹脂組成物を製造した。得られたポリプロピレン系樹脂組成物中の無機層状粘土鉱物の最終充填量、並びに該組成物の比重、MFR、プレス片の貯蔵弾性率および射出片の23℃における曲げ弾性率を表1に示す。

#### 【0048】実施例6

成分1として、エチレンとプロピレンが共重合されたエラストマー成分を7重量%含有し、MFRが30g/10分である耐衝撃性ポリプロピレン（プロピレン・エチレンブロック共重合体）を用い、成分1～成分3の配合割合を、成分1/成分2/成分3=63.0重量%/27.0重量%/10.0重量%とし、かつ二軸押出機を用いて熔融混練したこと以外は、実施例1と同様にしてポリプロピレン系樹脂組成物を製造した。得られたポリプロピレン系樹脂組成物中の無機層状粘土鉱物の最終充填量、並びに該組成物の比重、MFR、プレス片の貯蔵弾性率および射出片の曲げ弾性率を表1に示す。

#### 【0049】実施例7

ステアリルアンモニウム塩を30重量%含有するモンモリロナイトを、ステアリルアンモニウム塩を30重量%含有する合成マイカに代えたこと以外は、実施例1と同様にしてポリプロピレン系樹脂組成物を製造した。得られたポリプロピレン系樹脂組成物中の無機層状粘土鉱物の最終充填量、並びに該組成物の比重、MFRおよびプレス片の貯蔵弾性率を表1に示す。

#### 【0050】比較例1

酸無水物にて変性したポリプロピレン系樹脂（成分2）として、MFRが2000g/10分であって、ホモポリプロピレンと結合している酸無水物濃度が2重量%、分子量10000以下のホモポリプロピレンと結合している酸無水物濃度が0.63重量%、（成分2）中に含まれる遊離の酸無水物濃度が2.2重量%である無水マ

10

20

30

40

50



レイン酸変性ポリプロピレンを用いたこと以外は、実施例1と同様にしてポリプロピレン系樹脂組成物を製造した。得られたポリプロピレン系樹脂組成物中の無機層状粘土鉱物の最終充填量、並びに該組成物の比重、MFRおよびプレス片の貯蔵弾性率を表1に示す。

#### 【0051】比較例2

成分3として、アンモニウム塩にてイオン交換処理を行っていない合成マイカを用いたこと以外は、実施例1と同様にしてポリプロピレン系樹脂組成物を製造した。得られたポリプロピレン系樹脂組成物中の合成マイカの最終充填量、並びに該組成物の比重、MFRおよびプレス片の貯蔵弾性率を表1に示す。

#### 【0052】比較例3

成分2の酸無水物変性ポリプロピレンを用いず、成分1～成分3の配合割合を、成分1/成分2/成分3=95.0重量%/0.0重量%/5.0重量%としたこと以外は、実施例1と同様にしてポリプロピレン系樹脂組成物を製造した。得られたポリプロピレン系樹脂組成物中の無機層状粘土鉱物の最終充填量、並びに該組成物の比重、MFRおよびプレス片の貯蔵弾性率を表1に示す。

#### 【0053】比較例4

\*成分1として、エチレンとプロピレンが共重合されたエラストマー成分を7重量%含有し、MFRが30g/10分である耐衝撃性ポリプロピレン（プロピレン・エチレンブロック共重合体）を用い、成分2の酸無水物変性ポリプロピレンを用いず、成分3として、平均粒径が10μmのタルクを用いて、成分1～成分3の配合割合を、成分1/成分2/成分3=90.0重量%/0.0重量%/10.0重量%とし、かつ二軸押出機を用いて溶融混練してポリプロピレン系樹脂組成物を製造した。得られたポリプロピレン系樹脂組成物中のタルクの最終充填量、並びに該組成物の比重、MFR、プレス片の貯蔵弾性率および射出片の曲げ弾性率を表1に示す。

#### 【0054】比較例5

成分1～成分3の配合割合を、成分1/成分2/成分3=80.0重量%/0.0重量%/20.0重量%としたこと以外は、比較例4と同様にしてポリプロピレン系樹脂組成物を製造した。得られたポリプロピレン系樹脂組成物中のタルクの最終充填量、並びに該組成物の比重、MFR、プレス片の貯蔵弾性率および射出片の曲げ弾性率を表1に示す。

#### 【0055】

\*【表1】

	各成分の種類および配合割合						最終無機物 充填量	混練装置	物性値			
	成分1		成分2		成分3				比重	MFR	貯蔵弾性率 プレス片、20℃	曲げ弾性率 射出片、23℃
	種類	wt%	種類	wt%	種類	wt%						
実施例1	A	83.3	a	11.7	i	5.0	3.5	ラボ'プラストミル	0.925	9.1	2.24×10 <sup>10</sup>	
実施例2	A	78.2	a	16.7	i	7.1	5.0	ラボ'プラストミル	0.935	11.3	2.47×10 <sup>10</sup>	
実施例3	A	84.2	a	25.1	i	10.7	7.5	ラボ'プラストミル	0.947	7.7	2.82×10 <sup>10</sup>	
実施例4	A	52.4	a	33.3	i	14.3	10.0	ラボ'プラストミル	0.960	4.6	3.38×10 <sup>10</sup>	
実施例5	A	66.5	a	28.5	i	5.0	3.5	二軸押出機	0.925	30.4	2.20×10 <sup>10</sup>	2470
実施例6	B	83.0	a	27.0	i	10.0	7.0	二軸押出機	0.925	20.0	2.72×10 <sup>10</sup>	2870
実施例7	A	83.3	a	11.7	iv	5.0	3.5	ラボ'プラストミル	0.925	9.1	2.18×10 <sup>10</sup>	
比較例1	A	83.3	b	11.7	i	5.0	3.5	ラボ'プラストミル	0.925	20.9	2.06×10 <sup>10</sup>	
比較例2	A	83.3	a	11.7	ii	5.0	3.5	ラボ'プラストミル	0.925	20.2	1.74×10 <sup>10</sup>	
比較例3	A	85.0	—	0.0	i	5.0	3.5	ラボ'プラストミル	0.925	9.2	2.03×10 <sup>10</sup>	
比較例4	B	90.0	—	0.0	iii	10.0	10.0	二軸押出機	0.960	26.0	2.48×10 <sup>10</sup>	2310
比較例5	B	80.0	—	0.0	iii	20.0	20.0	二軸押出機	1.04	24.0	3.05×10 <sup>10</sup>	3140

符号の説明

成分1-A : MFRが10g/10分であるホモポリプロピレン

成分1-B : エチレンとプロピレンを共重合させたエラストマー成分を7wt%含有し、MFRが30g/10分であるプロピレン・エチレンブロック共重合体

成分2-a : MFRが1200g/10分であって、PPと結合している酸無水物濃度が2wt%、分子量10000以下のPPと結合している酸無水物濃度が1.01wt%、遊離の酸無水物濃度が0.01wt%である無水マレイン酸変性PP

成分2-b : MFRが2000g/10分であって、PPと結合している酸無水物濃度が2wt%、分子量10000以下のPPと結合している酸無水物濃度が0.63wt%、遊離の酸無水物濃度が2.2wt%である無水マレイン酸変性PP

成分3-i : ステアリアルアンモニウム塩を30wt%含有するように表面処理を施したモンモリロナイト

成分3-ii : 合成マイカ

成分3-iii : 平均粒径10μmのタルク

成分3-iv : ステアリアルアンモニウム塩を30wt%含有するように表面処理を施した合成マイカ

#### 【0056】

【発明の効果】本発明のポリプロピレン系樹脂組成物およびその製造方法により、無機充填材の充填量を低減し得る、低比重かつ高強度のポリプロピレン材料の提供が

可能となる。これにより、特に自動車部材等の軽量化が図れ、燃費効率向上による省エネルギー化、さらには、地球環境保護にも繋がるため、その工業的価値は極めて大きい。

## フロントページの続き

(51)Int.Cl.<sup>7</sup> 識別記号  
C 0 8 L 23:26)

F I テーマコード (参考)  
C 0 8 L 23:26)

(72)発明者 矢野 一憲  
三重県四日市市東邦町1番地 三菱化学株  
式会社基盤技術研究所内  
(72)発明者 藤田 祐二  
三重県四日市市東邦町1番地 日本ポリケ  
ム株式会社材料開発センター内  
(72)発明者 小林 明  
三重県四日市市東邦町1番地 日本ポリケ  
ム株式会社材料開発センター内  
(72)発明者 加藤 誠  
愛知県愛知郡長久手町大字長湫字横道41番  
地の1 株式会社豊田中央研究所内  
(72)発明者 臼杵 有光  
愛知県愛知郡長久手町大字長湫字横道41番  
地の1 株式会社豊田中央研究所内

(72)発明者 長谷川 直樹  
愛知県愛知郡長久手町大字長湫字横道41番  
地の1 株式会社豊田中央研究所内  
(72)発明者 岡本 浩孝  
愛知県愛知郡長久手町大字長湫字横道41番  
地の1 株式会社豊田中央研究所内  
(72)発明者 月々瀬 あずさ  
愛知県愛知郡長久手町大字長湫字横道41番  
地の1 株式会社豊田中央研究所内  
Fターム(参考) 4F070 AA15 AB03 AB11 AB24 AC27  
AE01 FA03 FB06 FC06  
4F071 AA15X AA20 AA20X AA21X  
AA75 AA76 AA78 AA88 AB30  
AE17 AH07 BB03 BC03  
4J002 BB121 BB141 BB151 BB202  
BB212 BP021 DJ006 FD016  
GN00